

**IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE**

In re application of: Masaakira HORINO

Serial Number: Not Yet Assigned

Filed: March 29, 2004

For: COSMETICS FOR ULTRAVIOLET LIGHT PROTECTION

Attorney Docket No.: 042168

Customer No.: 38834

**CLAIM FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119**

Commissioner for Patents  
P. O. Box 1450  
Alexandria, VA 22313-1450

March 29, 2004

Sir:

The benefit of the filing date of the following prior foreign application is hereby requested for the above-identified application, and the priority provided in 35 U.S.C. 119 is hereby claimed:


**Japanese Appln. No. 2003-163893, filed on June 9, 2003**

In support of this claim, the requisite certified copy of said original foreign application is filed herewith.

It is requested that the file of this application be marked to indicate that the applicants have complied with the requirements of 35 U.S.C. 119 and that the Patent and Trademark Office kindly acknowledge receipt of said certified copy.

In the event that any fees are due in connection with this paper, please charge our Deposit Account No. 50-2866.

Respectfully submitted,  
WESTERMAN, HATTORI, DANIELS & ADRIAN, LLP

  
Stephen G. Adrian  
Reg. No. 32,878

1250 Connecticut Avenue, N.W., Suite 700  
Washington, D.C. 20036  
Tel: (202) 822-1100  
Fax: (202) 822-1111  
SGA/II

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日                      2 0 0 3 年    6 月    9 日  
Date of Application:

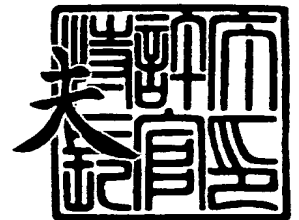
出 願 番 号                      特 願 2 0 0 3 - 1 6 3 8 9 3  
Application Number:  
[ST. 10/C]:                      [ J P 2 0 0 3 - 1 6 3 8 9 3 ]

出      願      人                      三好化成株式会社  
Applicant(s):

2 0 0 3 年 1 1 月    6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康



出証番号    出証特 2 0 0 3 - 3 0 9 1 9 3 8

【書類名】 特許願

【整理番号】 P7388GN

【提出日】 平成15年 6月 9日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 A61K 7/00  
A61K 7/42

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県相模原市大野台 1 - 2 3 - 1 2

【氏名】 堀野 政章

【特許出願人】

【識別番号】 391024700

【氏名又は名称】 三好化成株式会社

【代理人】

【識別番号】 100080816

【弁理士】

【氏名又は名称】 加藤 朝道

【電話番号】 045-476-1131

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 030362

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 0009683

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 紫外線防護用化粧料

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、分散剤とを含有することを特徴とする分散体。

【請求項 2】

前記紫外線散乱剤が、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化鉄、微粒子酸化セリウム及び微粒子リン酸セリウムーリン酸チタン複合体から選ばれる請求項 1 に記載の分散体。

【請求項 3】

前記無機酸化物が、シリカ、アルミナ、及び酸化ジルコニウムから選ばれる請求項 1 又は 2 に記載の分散体。

【請求項 4】

前記分散剤が、水溶性高分子である請求項 1 ～ 3 の何れかーに記載の分散体。

【請求項 5】

前記水溶性高分子が、ポリビニルアルコール、ポリビニルメチルエーテル、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸アミド、アルキル変性カルボキシビニルポリマー、カルボキシビニルポリマー、アクリル酸系共重合体、ポリビニルピロリドンと  $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、ビニルピロリドンー酢酸ビニル共重合体、ピロリドンージメチルアミノエチルメタアクリレート重合体との共重合体、アクリル酸エチルアクリルコポリマー、アルキルビニルエーテルと無水マレイン酸との架橋型ポリマー、スチレンーアクリル酸共重合体、ビニルナフタレンーマレイン酸共重合体、アクリル酸ジアリルジメチルアンモニウムクロリドーアクリルアミドコポリマー、アクリルアミドーアクリル酸アミドー 2-メチルプロパンスルフォネート、ガム質、セルロース誘導体、アクリルアミド系乳化増粘剤、及びアクリル酸系乳化増粘剤のうち少なくとも一種である請求項 4 に記載の分散体。

【請求項 6】

無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、分散剤とを含有することを特徴とす

る化粧料。

【請求項 7】

前記紫外線散乱剤が、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化鉄、微粒子酸化セリウム及び微粒子リン酸セリウムーリン酸チタン複合体から選ばれる請求項 6 に記載の化粧料。

【請求項 8】

前記無機酸化物が、シリカ、アルミナ、及び酸化ジルコニウムから選ばれる請求項 6 又は 7 に記載の化粧料。

【請求項 9】

前記分散剤が、水溶性高分子である請求項 6 ～ 8 の何れかに記載の化粧料。

【請求項 10】

化粧料全体に対し、前記被覆された紫外線散乱剤を紫外線散乱剤の純分に換算して、0.1～40重量%、及び前記分散剤を0.01～60重量%、それぞれ含有する請求項 6 ～ 9 の何れかに記載の化粧料。

【請求項 11】

更に、紫外線吸収剤を含有する請求項 6 ～ 10 の何れかに記載の化粧料。

【請求項 12】

水溶液系、可溶化系、乳化系、粉体分散系、水－油二層系又は水－油－粉体系の化粧料である請求項 6 ～ 11 の何れかに記載の化粧料。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、日焼けを防止する等のための紫外線防護用の化粧料に適用される分散体、詳しくは無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤及び分散剤を含有する分散体、及び当該分散体を含み、紫外線散乱剤の凝集が抑止され、紫外線防護効果が向上した化粧料等に関する。

【0002】

本発明により、配合すべき紫外線散乱剤の凝集を抑止し、当該紫外線散乱剤を分散剤に均一に分散させ、更に、その分散状態を長期間維持することができる。

また、このような分散体を化粧品に使用する場合には、紫外線防護効果等に優れた化粧料を提供することができる。

#### 【0 0 0 3】

##### 【従来の技術】

近年、紫外線の人体に対する悪影響が一般的に認知されるようになり、紫外線に対する防護（防御）を重視する傾向が強まっている。また、フロンガス等によるオゾン層の破壊により今後ますます紫外線量が増加することもよく知られている。これに対して、現在種々の紫外線防護効果を持つ製品が開発されており、今後もこの傾向が続くと考えられる。現在必要とされている高い紫外線防護効果を発揮させるためには、製品に多量の紫外線防護剤を配合することが近道である。このような紫外線防護剤のうち、主に紫外線を散乱させる紫外線散乱剤を配合した製品においては、紫外線散乱剤を均一に製品中に分散させることでその効果が得られる。しかしながら、これを化粧品（化粧品用乳化組成物等）中に分散させる場合には、通常カルボキシビニルポリマー、アルキル変性カルボキシポリマー等の分散剤が用いられるが、これらの分散剤との相互作用により、紫外線散乱剤は即時又は経時で凝集してしまい、紫外線散乱（防護）効果が十分に発揮されない。特に、紫外線散乱効果の高い微粒子酸化チタンや微粒子酸化亜鉛においては、一次粒子の表面活性が高いために容易に凝集が生じる。このため、化粧品中に配合する紫外線散乱剤の紫外線防護機能の向上と、その分散安定性を図る方法が求められている。

#### 【0 0 0 4】

通常化粧品において用いられる分散安定化の手法としては、アニオン性高分子を用いてゲル化させることで分散安定化を図るが、酸化チタン、酸化亜鉛等の無機粉体（粒子）を配合した場合においては、十分な分散が得られない。また、セルロース系等の非イオン性高分子を用いた場合でも、その構造上ゲルの降伏値が非常に低く十分な分散安定化が得られない。更に、化粧品用の無機粉体は、一般に金属酸化物や複合酸化物であり、比重が大きく、水系の剤型において使用する場合には、何らかの特定の方法を用いなければ満足することのできる分散安定性は得られない。そのうえ、無機粉体は等電点を有しているため、電解質により容

易に凝集するので、従来粉体を含有しない系で使用されてきたカルボキシビニルポリマー等の分散剤は使用し難い。それゆえ、石ケン等の界面活性剤やベントナイト等の無機増粘剤等によりゲル構造を形成させて分散安定化を図るのが常法であった。しかしながら、このような場合においては、ゲル強度の調節がし難く、流動性を有する（分散安定性の良好な）分散体を得ることは難しい。

#### 【0005】

一方、これまでに紫外線散乱剤を分散剤に分散させた場合における当該紫外線散乱剤の分散体中での凝集を抑止するために多くの提案がされている（例えば、特許文献1等参照。）。しかしながら、当該紫外線散乱剤の分散体中での凝集の抑止や、紫外線防護効果において、その更なる改善が求められている。

#### 【0006】

例えば、紫外線散乱剤水分散物及びポリアクリル酸アミドを化粧料に含有させることにより、紫外線散乱剤水分散物中の紫外線散乱剤の分散性及び紫外線防護効果が著しく向上した化粧料を提供できるという報告がある（特許文献1参照。）。しかしながら、報告されている紫外線散乱剤水分散物及びポリアクリル酸アミドを含有する化粧料では、紫外線散乱剤のポリアクリル酸アミド中での凝集はある程度改善されているものの、紫外線散乱剤水分散物中の紫外線散乱剤表面とポリアクリル酸アミドとが接触しているために、ポリアクリル酸アミドによる紫外線散乱剤の凝集が発生する。即ち、紫外線散乱剤が単分散又は略単分散した均一な状態になっていないため、紫外線散乱剤の効果が不十分であるばかりか、乳化組成物の安定性が悪いという問題があった。

#### 【0007】

このような状況下に、紫外線散乱剤の凝集が抑止され、従来技術に比較して、紫外線散乱剤の分散安定性に優れた分散体、即ち、紫外線散乱剤を分散剤に分散させた場合において当該紫外線散乱剤が分散体中に均一に分散し、かつ、その分散状態を長期間維持することができる安定な分散体、及びこのような分散体を配合し高い紫外線防護効果を有し、乳化安定性に優れ、更に使用感及び安全性も良好な化粧料を開発することが望まれている。

#### 【0008】

## 【特許文献 1】

特開2002-326906号公報

## 【0009】

## 【発明が解決しようとする課題】

そこで、本発明が解決しようとする課題は、分散剤に紫外線散乱剤を分散させた場合であっても、分散安定性に極めて優れている化粧料用の分散体、及び高い紫外線防護効果を有し、従来品より乳化安定性に優れ、更に使用感及び安全性も良好な化粧料等を提供することにある。

## 【0010】

## 【課題を解決するための手段】

本発明者等は、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤（被覆紫外線散乱剤）を分散剤に配合したときには、当該紫外線散乱剤の凝集が抑止されると共に、当該被覆紫外線散乱剤が分散体中に均一に分散し、その分散状態を長期間維持することができる分散安定性に極めて優れた分散体を調製することができることを見出した。また、前記の被覆紫外線散乱剤及び分散剤を配合させた化粧料、又は前記の被覆紫外線散乱剤及び分散剤を含有する分散体を配合させた化粧料では、当該紫外線散乱剤の凝集が抑止される。このように調製された化粧料においては、前記被覆紫外線散乱剤を用いることにより、紫外線散乱剤（未被覆の場合の紫外線散乱剤）の表面活性が抑止されているため、更に紫外線吸収剤を配合することが容易となり、高い紫外線防護効果が得られる。この化粧料は、従来品より乳化安定性に優れ、使用感等にも優れていること等を見出し、これ等種々の知見に基づいて本発明を完成するに至った。

## 【0011】

即ち、本発明は、無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、分散剤とを含有することに特徴を有する分散体（以下、「本発明の分散体」とも称する。）に存する。

## 【0012】

また、本発明の分散体では、前記紫外線散乱剤に、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化鉄、微粒子酸化セリウム及び微粒子リン酸セリウムーリン



酸チタン複合体から選ばれるものを使用することで、より分散安定性の高い被覆紫外線散乱剤を調製することができるので、より分散安定性に優れた分散体とすることができる。更に、本発明の分散体では、前記無機酸化物に、シリカ、アルミナ、及び酸化ジルコニウムから選ばれるものを使用することで、より分散安定性の高い被覆紫外線散乱剤を調製することができるので、より分散安定性に優れた分散体とすることができる。

#### 【0013】

本発明の分散体では、前記分散剤として、好ましくは水溶性高分子、より好ましくはポリビニルアルコール、ポリビニルメチルエーテル、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸アミド、アルキル変性カルボキシビニルポリマー、カルボキシビニルポリマー、アクリル酸系共重合体、ポリビニルピロリドンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、ビニルピロリドン-酢酸ビニル共重合体、ピロリドン-ジメチルアミノエチルメタアクリレート重合体との共重合体、アクリル酸エチルアクリルコポリマー、アルキルビニルエーテルと無水マレイン酸との架橋型ポリマー、スチレン-アクリル酸共重合体、ビニルナフタレン-マレイン酸共重合体、アクリル酸ジアリルジメチルアンモニウムクロリド-アクリルアミドコポリマー、アクリルアミド-アクリル酸アミド-2-メチルプロパンスルフォネート、ガム質、セルロース誘導体、アクリルアミド系乳化増粘剤、及びアクリル酸系乳化増粘剤のうち少なくとも一種を選択するとより分散安定性に優れた分散体を得ることができる。

#### 【0014】

本発明は、更に別の形態として、無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、分散剤とを含有することに特徴を有する化粧料、又は当該無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、当該分散剤とを分散体として含む、即ち前記記載の分散体を含むことに特徴を有する化粧料（以下、「本発明の化粧料」とも称する。）に存する。

#### 【0015】

また、本発明の化粧料では、前記紫外線散乱剤に、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化鉄、微粒子酸化セリウム及び微粒子リン酸セリウム-リン

酸チタン複合体から選ばれるものを使用することで、より乳化安定性に優れた化粧料とすることができる。前記無機酸化物に、シリカ、アルミナ、及び酸化ジルコニウムから選ばれるものを使用することで、より乳化安定性に優れた化粧料とすることができる。

#### 【0016】

更に、本発明の化粧料では、前記分散剤として、好ましくは水溶性高分子、より好ましくはポリビニルアルコール、ポリビニルメチルエーテル、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸アミド、アルキル変性カルボキシビニルポリマー、カルボキシビニルポリマー、アクリル酸系共重合体、ポリビニルピロリドンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、ビニルピロリドン-酢酸ビニル共重合体、ピロリドン-ジメチルアミノエチルメタアクリレート重合体との共重合体、アクリル酸エチルアクリルコポリマー、アルキルビニルエーテルと無水マレイン酸との架橋型ポリマー、スチレン-アクリル酸共重合体、ビニルナフタレン-マレイン酸共重合体、アクリル酸ジアリルジメチルアンモニウムクロリド-アクリルアミドコポリマー、アクリルアミド-アクリル酸アミド-2-メチルプロパンスルフォネート、ガム質、セルロース誘導体、アクリルアミド系乳化増粘剤、及びアクリル酸系乳化増粘剤のうち少なくとも一種を選択するとより乳化安定性に優れた化粧料とすることができる。

#### 【0017】

本発明の化粧料では、化粧料全体に対し、前記被覆された紫外線散乱剤を紫外線散乱剤純分に換算した上で、0.1～40重量%程度、及び前記分散剤を0.01～60重量%程度、それぞれ含有させることが好ましい。

#### 【0018】

更に、本発明の化粧料では、更に、紫外線吸収剤を含有させることにより、より高い紫外線防護効果を有する化粧料とすることができる。

#### 【0019】

尚、本発明の化粧料では、水溶液系、可溶化系、乳化系、粉体分散系、水-油二層系又は水-油-粉体系の化粧料として使用することが特に好ましい。

#### 【0020】

**【発明の実施の形態】**

以下、本発明の実施の形態について説明する。

本発明には、無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤（被覆紫外線散乱剤）と、分散剤とを含有する分散体、無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤（被覆紫外線散乱剤）と、分散剤とを含有する化粧料、及び前記分散体を含む（配合した）化粧料等が含まれる。尚、本発明の分散体を中心に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

**【0021】**

（本発明の分散体）

本発明の分散体は、無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤（以下、「被覆紫外線散乱剤」と称することがある。）及び分散剤を含有するものである。また、前記被覆紫外線散乱剤は前記分散剤中において凝集することなく、前記被覆紫外線散乱剤を前記分散剤中に均一にかつ安定に分散させることができる。本発明の分散体は、化粧料用の分散体として、分散安定性に極めて優れている。

**【0022】**

本発明において、無機酸化物で被覆される紫外線散乱剤については特に制限は無く、例えば、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化鉄及び微粒子酸化セリウム等の金属酸化物、微粒子リン酸セリウムーリン酸チタン複合体等の複合酸化物等が挙げられる。好ましくは、微粒子酸化チタン、微粒子酸化亜鉛、微粒子酸化鉄、微粒子酸化セリウム及び微粒子リン酸セリウムーリン酸チタン複合体から選ばれる。尚、前記微粒子リン酸セリウムーリン酸チタン複合体として、一般式  $Ce_xTi_{1-x}P_2O_7$  ( $0 \leq x \leq 1$ ) で表されるものを使用することがより好ましく、具体的には、例えば、 $Ce_{0.95}Ti_{0.05}P_2O_7$ 、 $Ce_{0.1}Ti_{0.9}P_2O_7$ 、 $Ce_{0.05}Ti_{0.95}P_2O_7$ 、 $Ce_{0.5}Ti_{0.5}P_2O_7$ 、 $Ce_{0.07}Ti_{0.93}P_2O_7$  等が選択される。

**【0023】**

尚、本発明において微粒子とは、一次粒子の平均粒子径として、 $0.02 \sim 0.08 \mu m$  の粒子径を有する粒子をいう。

**【0024】**

本発明において被覆物質として使用する無機酸化物については特に制限は無いが、好ましくはシリカ（酸化ケイ素）、アルミナ（酸化アルミニウム）、酸化ジルコニウム、及び酸化鉄から選択される。また、水酸化鉄等の無機水酸化物を用いることもできる。尚、これらの無機酸化物及び無機水酸化物については、一種又は二種以上を組み合わせ使用することができる。

#### 【0025】

また、本発明において、前記無機酸化物の被覆量については、被覆される紫外線散乱剤の種類やその比表面積により異なるが、被覆する前の紫外線散乱剤（被覆すべき紫外線散乱剤）に対して、好ましくは2～40重量%程度、より好ましくは5～30重量%程度である。

#### 【0026】

前記無機酸化物の被覆方法については特に制限は無く、常法により行うことができる。例えば、シリカを被覆する場合には、プラズマCVD法、紫外線散乱剤を旋回乱流させた中にエチルシリケートを噴霧した後直流プラズマジェット処理する方法、水溶性シリカ塩と還元剤とを用いて反応によりシリカを被覆する方法等、また、アルミナを被覆する場合には、水溶性アルミニウム塩を加水分解させて被覆し、その後焼成する方法等が例示される。

#### 【0027】

このようにして得られた被覆紫外線散乱剤において、紫外線散乱剤の表面上には無機酸化物の薄膜が形成される。このときの当該薄膜の膜厚については、平均値で0.1～10nm程度にすることができる。このように前記紫外線散乱剤（詳しくはその表面）を被覆している前記無機酸化物の薄膜は、前記紫外線散乱剤と前記分散剤との接触を完全に防ぐため、分散剤による紫外線散乱剤の凝集を防ぐか、又は抑えると共に、乳化組成物として使用した場合におけるエマルジョンの破壊や、その形態が硬いゲル状になることを防ぐか、又は抑えることができる。

#### 【0028】

尚、本発明の分散体においては、前記分散剤に対して前記被覆紫外線散乱剤を一種又は二種以上使用することができ、このような分散体も当然本発明の分散体

に含まれる。

### 【0029】

本発明において分散剤については、好ましくは水溶性高分子が選択される。前記水溶性高分子としては、例えば、ポリビニルアルコール、ポリビニルメチルエーテル、ポリビニルピロリドン、ポリアクリル酸アミド、アクリル酸メタアクリル酸アルキル共重合体等のアルキル変性カルボキシビニルポリマー、アクリル酸アルキル共重合体等のカルボキシビニルポリマー、アクリル酸系共重合体（例えば、International Cosmetic Ingredient Dictionaryに収載されているアクリレート／セテスー20 イタコン酸共重合体（ACRYLATES/CETHETH-20 ITACONATE COPOLYMER）、アクリレート／セテスー20 メタクリレート共重合体（ACRYLATES/CETHETH-20 METHACRYLATE COPOLYMER）、アクリレート／ステアレスー50 アクリレート共重合体（ACRYLATES/STEARETH-50 ACRYLATE COPOLYMER）、アクリレート／ステアレスー20 イタコン酸共重合体（ACRYLATES/STEARETH-20 ITACONATE COPOLYMER）、アクリレート／ステアレスー20 メタクリレート共重合体（ACRYLATES/STEARETH-20 METHACRYLATE COPOLYMER）等）、ポリビニルピロリドン／エイコセン共重合体、ポリビニルピロリドン／ヘキサデセン共重合体等のポリビニルピロリドンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体、ビニルピロリドン-酢酸ビニル共重合体、ピロリドン-ジメチルアミノエチルメタアクリレート重合体との共重合体、アクリル酸エチルアクリルコポリマー、アルキルビニルエーテルと無水マレイン酸との架橋型ポリマー、スチレン-アクリル酸共重合体、ビニルナフタレン-マレイン酸共重合体、アクリル酸ジアリルジメチルアンモニウムクロリド-アクリルアミドコポリマー、アクリルアミド-アクリル酸アミド-2-メチルプロパンスルフォネート、アカシヤガム、ベンゾインガム、ダンマルガム、グアヤクガム、サポニン、サクシノグルカン、カラヤガム、トラガカントガム、キャロブガム、クインスシード、エステルガム、寒天、カゼイン、ネイティブジェランガム、キサンタンガム、ローストビーングラム、カラギーナン、キチン、プルラン、ガードラン、デキストラン、ゼラチン、ペクチン等のガム質、メチルセルロース、エチルセルロース、ソジウムカルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、プロマルジン、アルギ

ン酸ソーダ、ペクチン酸ソーダ、澱粉グリコール酸ナトリウム、アルギン酸プロピレングリコールエステル、リグニンスルホン酸塩等のセルロース誘導体等が挙げられる。また、前記水溶性高分子として、アクリルアミド系乳化増粘剤、アクリル酸系乳化増粘剤等の乳化型の水溶性高分子の増粘剤を使用することもできる。これらのうち、特にアルキル変性カルボキシビニルポリマーを使用することが好ましい。

### 【0030】

尚、前記水溶性高分子については、市販品を使用することができる。例えば、ポリアクリル酸アミドとして、セピゲルシリーズ（セピック社製）等、アルキル変性カルボキシビニルポリマーとして、CARBOPOL 1342、PEMUREN TR-1、PEMUREN TR-2（BF Goodrich社製）等、カルボキシビニルポリマーとして、アクリル酸を主鎖として架橋剤がアクリルショ糖やペンタエリスリトール等を含みカルボキシル基を有する水溶性高分子であるCARBOPOL 941（Goodrich社製）、ハイビスワコー 105（和光純薬製）等、アクリル酸系共重合体として、STRUCTURE 3000、STRUCTURE 2000（ナショナルスターチ社製）、ACRYSOL 25、ACRYSOL 22、ACULYN 25、ACLYN 22（ローム&ハース社製）、ANTIL 208（ゴールドシュミット社製）等、ポリビニルピロリドンと $\alpha$ -オレフィンとの共重合体として、アンタロンV-220、アンタロンV-216（GAF社製）、ビニルピロリドン-酢酸ビニル共重合体として、ルビスコールVA（BASF社製）等、ビニルピロリドン-ジメチルアミノエチルメタアクリレート重合体との共重合体として、コポリマー937（ISP社製等）、アクリルアミド系乳化増粘剤として、セピゲル 305、セピゲル 501（セピック社製）、シマゲル 600（成和化成製）等、アクリル酸系乳化増粘剤として、シマゲル NS、シマゲル EG、シマゲル A、シマゲル EPG（成和化成製）等が挙げられる。

### 【0031】

また、前記分散剤については、一種又は二種以上を混合して用いることができる。

**【0032】**

本発明の分散体の組成において、前記紫外線散乱剤や前記分散剤の使用量には、特に制限は無いが、前記紫外線散乱剤については紫外線散乱剤の純分に換算して、好ましくは1～35重量%程度使用され、前記分散剤については好ましくは5～50重量%程度使用される。尚、分散体全組成中の被覆紫外線散乱剤の濃度については、好ましくは10～60重量%程度、より好ましくは30～50重量%程度が選択される。

**【0033】**

本発明において、前記被覆紫外線散乱剤を前記分散剤に混合分散させる方法については、公知の方法を採用すればよく、特に限定されない。例えば、サンドグラインデングミル、ボールミル、コロイドミル、ホモミキサー等の混合分散機を使用して分散体を製造することができる。

**【0034】**

本発明において、前記紫外線散乱剤及び前記分散剤を含有する分散体は、前記記載の如く、メカノケミカル処理により分散剤への分散状態が安定に保たれている。従って、本発明において、前記分散体については前記紫外線散乱剤及び前記分散剤を含有することを基本構成とすればよく、界面活性剤を配合させることを必要としない。また、化粧品とする場合の処方については特に制限されず、水、乳化組成物、ジェル組成物等に適用した場合であっても、容易に分散し、安定化する。

**【0035】**

本発明の分散体に、更に、1,2-ペンタンジオール、1,2-ヘキサンジオール、1,2-ヘプタンジオール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1,3-ブチレングリコール、ヘキシレングリコール、グリセリン、ジグリセリン、ソルビトール等の保湿剤を配合することができる。

**【0036】**

尚、本発明において使用する紫外線散乱剤の代わりに、化粧品に使用される顔料級（顔料と同程度の大きさ：平均粒子径0.1～0.2 $\mu$ m程度）の白色顔料

である酸化チタン、酸化亜鉛、及び酸化鉄や、無機色材の群青、及び紺青や、粘土鉱物であるカオリン、タルク、セリサイト、マイカ、及び炭酸マグネシウムや、チタン酸コバルト及び酸化チタン-酸化鉄等の混合焼成物や、ドーブ粉体顔料や、赤色 226 号等の有機顔料、赤色 202 号、黄色 5 号、青色 1 号等のレーキ顔料を前記無機酸化物で被覆して被覆物を調製し、この被覆物を分散剤中に分散させた場合にも、分散安定性に極めて優れた分散体を提供できる。更にこのような分散体を配合した化粧料、又は被覆物（前記白色顔料等を前記無機酸化物で被覆した被覆物）と分散剤とを含む化粧料は、従来品より乳化安定性に優れ、更に使用感及び安全性も良好である。

#### 【0037】

（本発明の化粧料）

本発明の化粧料は、前記記載の無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、分散剤とを含有する化粧料、又は前記記載の分散体（本発明の分散体）を含有する化粧料である。即ち、当該無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤と、当該分散剤とをそれぞれ配合させて化粧料とすることもできるし、これらを分散体としてから配合させて化粧料とすることもできる。尚、当該無機酸化物で被覆された紫外線散乱剤は、前記記載のように調製することができ、また、当該分散体は、前記記載のように調製することができる。

#### 【0038】

本発明において、化粧料の処方については特に困難は無く、従来から使用されている技術、特に、紫外線散乱剤を化粧料に使用する技術に基づいて乳化等を行い、目的とした化粧料を得ることができる。

#### 【0039】

本発明の化粧料において、前記記載の被覆された紫外線散乱剤を使用する場合には、前記被覆された紫外線散乱剤及び前記分散剤の各成分の配合量は、化粧料の性質に応じて任意に選択されるが、化粧料全組成中に、前記被覆された紫外線散乱剤については、紫外線散乱剤の純分に換算して、好ましくは 0.1～40 重量%程度、より好ましくは 1.0～30 重量%程度、更に好ましくは 1.0～20 重量%程度配合することができ、前記分散剤については、好ましくは 0.01



～60重量%程度、より好ましくは、塗布初期時において、その使用感、特にゲル組成物及び乳化組成物におけるWater Off感が強く、肌に水々しさを感じさせ、清涼感を付与する一方、使用（塗布）後において、透明感を有し、適度な粉感を感じさせる仕上がりにするために、0.05～20重量%程度配合することができる。0.01重量%未満では乳化がし難くなり、顔料の沈降等が発生し、安定性において問題となるばかりか、使用感としてのWater Off感が得られなくなるので好ましくない。60重量%を超えて配合しても乳化作用及び乳化安定性の効果の増大が期待できないばかりか、使用上ののびや、つきが悪く、きしみ感が出て肌に水々しさを感じさせる効果や清涼感を付与する効果が低下するので好ましくない。

#### 【0040】

一方、本発明の化粧料において、前記記載の分散体（本発明の分散体）を使用する場合には、前記分散体の配合量は、同様に化粧料の性質に応じて任意に選択されるが、化粧料全組成中に、前記分散体については、好ましくは2～60重量%程度、より好ましくは3～50重量%程度、更に好ましくは5～40重量%程度配合することができる。

#### 【0041】

本発明の化粧料には、更に紫外線吸収剤を配合させることができる。紫外線吸収剤としては、例えば、オクチルシンナメート、エチル-4-イソプロピルシンナメート、メチル-2,5-ジイソプロピルシンナメート、エチル-2,4-ジイソプロピルシンナメート、メチル-2,4-ジイソプロピルシンナメート、プロピル-p-メトキシシンナメート、イソプロピル-p-メトキシシンナメート、イソアミル-p-メトキシシンナメート、オクチル-p-メトキシシンナメート、2-エトキシエチル-p-メトキシシンナメート、シクロヘキシル-p-メトキシシンナメート、エチル- $\alpha$ -シアノ- $\beta$ -フェニルシンナメート、2-エチルヘキシル- $\alpha$ -シアノ- $\beta$ -フェニルシンナメート、グリセリルモノ-2-エチルヘキサノイル-ジパラメトキシシンナメート等の桂皮酸系紫外線吸収剤；2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-メトキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4,4'-ジメトキシベンゾフェノン、

2, 2', 4, 4' - テトラヒドロキシベンゾフェノン、2 - ヒドロキシ - 4 - メトキシベンゾフェノン、2 - ヒドロキシ - 4 - メトキシ - 4' - メチルベンゾフェノン、2 - ヒドロキシ - 4 - メトキシベンゾフェノン - 5 - スルホン酸塩、4 - フェニルベンゾフェノン、2 - エチルヘキシル - 4' - フェニル - ベンゾフェノン - 2 - カルボキシレート、2 - ヒドロキシ - 4 - n - オクトキシベンゾフェノン、4 - ヒドロキシ - 3 - カルボキシベンゾフェノン等のベンゾフェノン系紫外線吸収剤；PABAモノグリセリンエステル、N, N - ジプロポキシPABAエチルエステル、N, N - ジエトキシPABAエチルエステル、N, N - ジメチルPABAエチルエステル、N, N - ジメチルPABAブチルエステル、N, N - ジメチルPABAメチルエステル等のパラアミノ安息香酸系紫外線吸収剤；アミノサリシレート、メンチルサリシレート、ホモメンチルサリシレート、オクチルサリシレート、フェニルサリシレート、ベンジルサリシレート、p - イソプロパノールフェニルサリシレート等のサリチル酸系紫外線吸収剤；アントラニル酸メチル等のアントラニル酸系紫外線吸収剤；及び、3 - (4' - メチルベンジリデン) - d - カンファー、3 - ベンジリデン - d, 1 - カンファー、ウロカニン酸、ウロカニン酸エチルエステル、オクチルトリアゾン、2 - フェニル - 5 - メチルベンゾキサゾール、2 - (2' - ヒドロキシ - 5' - メチルフェニル) ベンゾトリアゾール、4 - メトキシ - 4' - t - ブチルジベンゾイルメタン等の紫外線吸収剤等が挙げられる。尚、これらの紫外線吸収剤の配合量については、紫外線散乱剤が良好な分散状態を保っているため、少量の配合量で高い紫外線防止（防護）効果が得られる。

#### 【0042】

本発明の化粧料には、本発明の目的及び効果（乳化安定性等）を阻害しない範囲で通常の化粧料等に用いられる他の成分、例えば、液体油脂、固体油脂、液体又は固体の油脂、ロウ類、エステル油、炭化水素油、シリコーン、低級アルコール、ステロール、保湿剤、金属イオン封鎖剤、中和剤、pH調整剤、酸化防止剤、抗菌剤、各種の抽出液、薬剤等を適宜配合することができる。

#### 【0043】

前記液体油脂として、例えば、アマニ油、ツバキ油、マカデミアナッツ油、ト

ウモロコシ油、ミソ油、オリーブ油、アボガド油、サザンカ油、ヒマシ油、サフラワー油、キウニン油、シナモン油、ホホバ油、ブドウ油、ヒマワリ油、アルモンド油、ナタネ油、ゴマ油、小麦胚芽油、米胚芽油、米ヌカ油、綿実油、大豆油、落花生油、茶実油、月見草油、卵黄油、牛脚脂、肝油、トリグリセリン、トリオクタン酸グリセリン、トリイソパルミチン酸グリセリン等が挙げられる。

#### 【0044】

前記固体油脂として、例えば、カカオ脂、牛脂、羊脂、豚脂、馬脂、硬化油、硬化ヒマシ油、モクロウ、シアバター等が挙げられる。

#### 【0045】

前記液体又は固体の油脂として、例えば、ヤシ油、パーム油、パーム核油等が挙げられる。

#### 【0046】

前記ロウ類として、例えば、ミツロウ、キャンデリラロウ、綿ロウ、カルナウバロウ、ベイベリーロウ、イボタロウ、鯨ロウ、モンタンロウ、ヌカロウ、ラノリン、還元ラノリン、硬質ラノリン、カポックロウ、サトウキビロウ、ホホバロウ、セラックロウ等が挙げられる。

#### 【0047】

前記エステル油として、オクタン酸セチル等のオクタン酸エステル、トリ-2-エチルヘキサエン酸グリセリン、テトラ-2-エチルヘキサン酸ペンタエリスリット等のイソオクタン酸エステル、ラウリン酸ヘキシル等のラウリン酸エステル、ミリスチン酸イソプロピル、ミリスチン酸オクチルドデシル等のミリスチン酸エステル、パルミチン酸オクチル等のパルミチン酸エステル、ステアリン酸イソセチル等のステアリン酸エステル、イソステアリン酸イソプロピル等のイソステアリン酸エステル、イソパルミチン酸オクチル等のイソパルミチン酸エステル、オレイン酸オクチルドデシル等のオレイン酸エステル、アジピン酸ジイソプロピル等のアジピン酸ジエステル、セバシン酸ジエチル等のセバシン酸ジエステル、リンゴ酸ジイソステアリル等が挙げられる。

#### 【0048】

前記炭化水素油として、流動パラフィン、オゾケライト、スクワラン、スクワ

レン、プリスタン、パラフィン、イソパラフィン、セレシン、ワセリン、マイクロクリスタリンワックス等が挙げられる。

#### 【0049】

前記シリコーンとしては、ジメチルポリシロキサン、メチルフェニルポリシロキサン、メチルハイドロジェンポリシロキサン等の鎖状シリコーン、オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、ドデカメチルシクロヘキサシロキサン等の環状シリコーン等が挙げられる。

#### 【0050】

前記低級アルコールとしては、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール等が挙げられる。

#### 【0051】

前記ステロールとしては、コレステロール、シトステロール、フィトステロール、ラノステロール等が挙げられる。

#### 【0052】

前記保湿剤としては、1, 2-ペンタンジオール、1, 2-ヘキサジオール、1, 2-ヘプタンジオール、ポリエチレングリコール、プロピレングリコール、ジプロピレングリコール、1, 3-ブチレングリコール、ヘキシレングリコール、グリセリン、ジグリセリン、ソルビトール等が挙げられる。

#### 【0053】

前記金属イオン封鎖剤としては、アラニン、エデト酸ナトリウム塩、ポリリン酸ナトリウム、メタリン酸ナトリウム、リン酸等が挙げられる。

#### 【0054】

前記中和剤としては、2-アミノ-2-メチル-1-プロパノール、2-アミノ-2-メチル-1, 3-プロパンジオール、水酸化カリウム、水酸化ナトリウム、L-アルギニン、L-リジン等のアミノ酸類、トリエタノールアミン、炭酸ナトリウム等が挙げられる。

#### 【0055】

前記pH調整剤としては、乳酸、クエン酸、グリコール酸、コハク酸、酒石酸、d,l-リンゴ酸、炭酸カリウム、炭酸水素ナトリウム、炭酸水素アンモニウム

等が挙げられる。

【0056】

前記酸化防止剤としては、アスコルビン酸、 $\alpha$ -トコフェロール、ジブチルヒドロキシトルエン、ブチルヒドロキシアニソール等が挙げられる。

【0057】

前記抗菌剤としては、安息香酸、サリチル酸、石炭酸、ソルビン酸、パラオキシ安息香酸エステル、パラクロルメタクレゾール、ヘキサクロロフェン、塩化ベンザルコニウム、塩化クロルヘキシジン、トリクロロカルバニド、感光色素、フェノキシエタノール等が挙げられる。

【0058】

前記各種の抽出液としては、ドクダミエキス、オウバクエキス、メリロートエキス、オドリコソウエキス、カンゾウエキス、シャクヤクエキス、サボンソウエキス、ヘチマエキス、キナエキス、ユキノシタエキス、クララエキス、コウホネエキス、ウイキョウエキス、サクラソウエキス、バラエキス、ジオウエキス、レモンエキス、シコンエキス、アロエエキス、ショウブ根エキス、ユーカリエクス、スギナエキス、セージエキス、タイムエキス、茶エキス、海藻エキス、キューカンバーエキス、チョウジエキス、キイチゴエキス、メリッサエキス、ニンジンエキス、カロットエキス、マロニエエキス、モモエキス、桃葉エキス、クワエキス、ヤグリマギクエキス、ハマメリス抽出液、プラセンタエキス、胸線抽出物、シルク抽出液等が挙げられる。

【0059】

前記薬剤としては、ビタミンA油、レチノール、パルミチン酸レチノール、イノシット、塩酸ピリドキシン、ニコチン酸ベンジル、ニコチン酸アミド、ニコチン酸DL- $\alpha$ -トコフェロール、アスコルビン酸リン酸マグネシウム、ビタミンD2（エルゴカシフェロール）、dl- $\alpha$ -トコフェロール、dl- $\alpha$ -トコフェロール、2-L-アスコルビン酸ジエステルカリウム、酢酸dl- $\alpha$ -トコフェロール、パントテン酸、ビオチン等のビタミン類、エストラジオール、エチニルエストラジオール等のホルモン、アルギニン、アスパラギン酸、シスチン、システイン、メチオニン、セリン、ロイシン、トリプトファン等のアミノ酸、アラ

ントイン、グリチルレチン酸、アズレン等の抗炎症剤、アルブチン等の美白剤、酸化亜鉛、タンニン酸等の収斂剤、L-メントール、カンフル等の清涼剤やイオウ、塩化リゾチーム、塩化ピリドキシン、 $\gamma$ -オリザノール等が挙げられる。尚、前記薬剤については、遊離の状態で使用することができる他、造塩可能なものは酸又は塩基の塩の型で、また、カルボン酸基を有するものはそのエステル型で使用する事ができる。

#### 【0060】

更に、本発明の化粧料には、必要に応じて適当な香料、色素等を、本発明の目的及び効果（乳化安定性等）を阻害しない範囲で適宜配合することができる。

#### 【0061】

本発明の化粧料の剤型については特に限定は無く、水溶液系、可溶化系、乳化系、粉体分散系、水-油二層系、水-油-粉体系等、何れのものでもよい。例えば、スキンケアエッセンス、アンダーメイクアップジェル、ファンデーション、ヘアスタイリングジェル、ボディジェル、マッサージジェル、拭き取り用パック、サンスクリーン乳液、サンスクリーンクリーム、整髪料、ヘアクリーム、ヘアリンズ、染毛剤、サンスクリーンジェル、モイスチャージェル、サンスクリーンローション、サンカムローション等が例示される。特に水溶液系、可溶化系、乳化系、粉体分散系、水-油二層系、水-油-粉体系の化粧料として使用することが好ましい。

#### 【0062】

##### 【実施例】

以下、実施例及び比較例により本発明を詳細に説明するが、これらの実施例及び比較例により本発明は何ら制限されるものではない。

#### 【0063】

##### 〔実施例1〕被覆紫外線散乱剤の製造例-1

微粒子酸化チタン（TT0-55A：石原産業製）をプラズマCVD法によりシリカ被覆することによって、シリカ被覆微粒子酸化チタン（シリカ被覆量14.0%、平均膜厚4.4nm）を得た。

#### 【0064】

## [実施例 2] 被覆紫外線散乱剤の製造例-2

微粒子酸化チタン (TT0-55A: 石原産業製) を、ケイ酸ソーダと還元剤とを用いて反応によりシリカ被覆することによって、シリカ被覆微粒子酸化チタン (シリカ被覆量 12.4%、平均膜厚 3.8 nm) を得た。

## 【0065】

## [実施例 3] 被覆紫外線散乱剤の製造例-3

微粒子酸化チタン (TT0-55A: 石原産業製) に替えて、微粒子酸化亜鉛 (FINEX 25: 堺化学製) を使用すること以外は、実施例 1 と同様の方法でシリカ被覆微粒子酸化亜鉛 (シリカ被覆量 14.0%、平均膜厚 4.0 nm) を製造した。

## 【0066】

## [実施例 4] 被覆紫外線散乱剤の製造例-4

微粒子酸化亜鉛 (FINEX50: 堺化学製) の存在下、アルミン酸ソーダを加水分解させた後、550℃、5時間焼成してアルミナ被覆微粒子酸化亜鉛 (アルミナ被覆量 15.4%、平均膜厚 4.8 nm) を製造した。

## 【0067】

尚、上記実施例 1～4 において、被覆した無機酸化物の定量については蛍光 X 線により行い、その被覆層の厚さについては透過型電子顕微鏡写真から算出した。

## 【0068】

## [実施例 5] 分散体の製造例-1

下記表 1 の組成に基づいて下記製造方法により分散体を製造した。

(製造方法)

①精製水にアクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体 (PEMUREN TR-2、BF Goodrich社製) を加え、スターラーで攪拌し、溶解させた。

②①で得られた水溶液にトリエタノールアミンを加えて中和させ、アクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体溶液を得た。

③実施例 1 で得られた被覆紫外線散乱剤を、分散剤成分及びその他の成分の混合物全体に対して、紫外線散乱剤の純分に換算して 2.5 重量%となるように精秤し、これを②で得られたアクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体溶液に

、加え、良く分散させた。

# 【0069】

【表1】 分散体の組成（単位：重量％）

成 分		配合量
紫外線散乱剤成分	実施例1で得られた被覆紫外線散乱剤	2.5*
分散剤成分	アクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体**	0.2
その他の成分	トリエタノールアミン	0.2
	精製水	99.6

\*実施例1で得られた被覆紫外線散乱剤が、分散剤成分及びその他の成分の混合物全体に対して、紫外線散乱剤の純分に換算して2.5重量％となるように（外添加）した

\*\*PEMUREN TR-2（BF Goodrich社製）

# 【0070】

〔比較例〕 分散体の製造例－2

実施例1で得られた被覆紫外線散乱剤に替えて、未被覆の微粒子酸化チタン（TT0-55A：石原産業製）を使用すること以外は、実施例5と同様の方法で分散体を製造した。

# 【0071】

〔実施例6〕 紫外線防護効果及び分散性の評価

実施例5及び比較例において得られた分散体について、下記測定法によりSPF値を測定することによって紫外線防護効果の評価を行った。尚、コントロールとしてアクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体溶液（PEMUREN TR-2、BF Goodrich社製）についても、下記測定法によりSPF値を測定した。また、目視による分散性の評価もそれぞれ行った。

# 【0072】

（SPF（日焼け止め指数）の測定）



①縦100mm×横100mm×高さ3mmの石英板にトランスポアサージカルテープ（3M社製）を貼り、その上に6.4cm×6.4cm（約40cm<sup>2</sup>）の試料塗布用領域を確保した。

②前記試料塗布用領域に、アクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体溶液（試料1）0.08gをスポンジパフで2.0mg/cm<sup>2</sup>程度となるように塗布し、15分間放置した。

③SPFアナライザー（SPF-290 Analyzer、Optometrics社製）を使用してアクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体溶液（試料1）を塗布した表面に16mmφの照射面積の測定光をあて、9スポット測定し、9つの測定値の平均値をSPF値とした。

④上記①から③の操作を3回、繰り返して平均値を取った。

【0073】

尚、比較例において得られた分散体（試料2）及び実施例5において得られた分散体（試料3）についても前記同様にSPFの測定を行った。これらの評価結果を下記表2に示す。

【0074】

【表2】 評価結果

試料	SPF	目視による分散性の評価	評価
1 アクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体溶液*	1.0	—	—
2 比較例において得られた分散体	1.0	目視で0.5mm前後の粒子が点在していた	×
3 実施例5において得られた分散体	8.1	目視で全く粒子がみられず、ガラス板にのばしても粒子は点在していなかった	◎

\*PEMUREN TR-2（BF Goodrich社製）

【0075】

（評価結果）

実施例 5 において得られた分散体において、その SPF 値は、比較例において得られた分散体と比べても、極めて高い。このことは、実施例 5 において得られた分散体中に含まれるシリカ被覆微粒子酸化チタンにおいて、その被覆膜が均一、かつ完全に微粒子酸化チタンの表面上を被覆しているためである。

#### 【0076】

また、目視による分散性の評価をした結果、比較例において得られた分散体では、0.5mm 前後の凝集した微粒子酸化チタン（粒子）が点在しており、一定時間静置後には、相分離（粒子の沈降）が生じた。一方、実施例 5 において得られた分散体では、全く微粒子酸化チタン（粒子）はみられず、ガラス板上にのばしても微粒子酸化チタン（粒子）は点在していなかった。

#### 【0077】

以上から、本発明の分散体において、その分散剤中で紫外線散乱剤が均一に、かつ安定に分散していることが分かる。このことから、このような分散体は、紫外線散乱剤の分散安定性に優れていることが明らかである。従って、本発明によれば分散剤中に均一に、かつ安定に紫外線散乱剤が分散しているので、紫外線散乱剤の分散安定性に極めて優れた分散体を提供することができる。

#### 【0078】

[実施例 7] 化粧料の製造例－1

下記表 3 の組成に基づいて、下記製造方法によりスキンケアエッセンスを製造した。

#### 【0079】

(製造方法)

- ① 下記 A 相成分を加熱、可溶化させると共に分散させた。
- ② ① で得られた混合物に下記 B 相成分を加えて中和させ、攪拌冷却して、目的とする化粧料（スキンケアエッセンス）を得た。

#### 【0080】

【表 3】 化粧品（スキンケアエッセンス）の組成（単位：重量部）

成 分		配合量
A 相	実施例 1 において得られたシリカ被覆微粒子酸化チタン	10.0
	1,3-ブチレングリコール	10.0
	コンドロイチン硫酸ナトリウム	0.2
	メチルパラベン	0.2
	アクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体*	0.2
	ポリオキシエチレンメチルポリシロキサン共重合体	0.5
	POE (30) POP (6) デシルテトラデシルエーテル	0.5
	ユーカリエクス	1.0
	アルキロール加水分解コラーゲンアミノプロパンジオール塩	0.2
	精製水	60.0
B 相	トリエタノールアミン	0.3
	精製水	16.9

\*PEMUREN TR-2 (BF Goodrich社製)

### 【0081】

(化粧料の評価)

得られた化粧料（スキンケアエッセンス）を、40℃、3ヶ月放置した後、この化粧料について、実施例 6 における SPF の測定方法と同様の方法により紫外線防護効果について評価（SPF の測定）を行った。

### 【0082】

この結果、SPF 値は、28.0 であった。

### 【0083】

## 〔実施例 8〕化粧料の製造例－2

下記表 4 の組成に基づいて、下記製造方法によりサンスクリーンローションを製造した。

## 【0084】

(製造方法)

①下記 A 相成分を加熱、可溶化させて分散させ、攪拌冷却した。

②その後、①で得られた混合物に下記 B 相成分の混合物を加え、更に下記 C 相成分を加えて攪拌し、目的とする化粧料 (サンスクリーンローション) を得た。

## 【0085】

【表 4】 化粧料 (サンスクリーンローション) の組成 (単位: 重量部)

成 分		配合量
A 相	アクリル酸・メタアクリル酸アルキル共重合体*	1. 7 4
	トリエタノールアミン	0. 2
	精製水	53. 8 5
	4-tert-ブチル 4'-メトキシジベンゾイルメタン	1. 0
	パラメトキシケイ皮酸 2-エチルヘキシル	7. 0
	ピバリン酸 2-オクチルドデシル	3. 0
B 相	実施例 1 において得られたシリカ被覆微粒子酸化チタンのプロピレングリコール分散体**	12. 5
	シリカビーズ	0. 8
C 相	エタノール	20. 0

\*PEMUREN TR-2 (BF Goodrich社製) の 2 % 水溶液

\*\*実施例 1 において得られたシリカ被覆微粒子酸化チタンの濃度 40 重量%

## 【0086】

(化粧料の評価)

得られた化粧品（サンスクリーンローション）を 40℃、3ヶ月放置した後、この化粧品について、紫外線吸収剤の着色化や、化粧品における分離及びゲル化の有無を確認すると共に、このときの紫外線防護効果について、実施例 6 における SPF の測定方法と同様の方法により評価（SPF の測定）を行った。

【0087】

この結果、紫外線吸収剤の着色化や、化粧品における分離及びゲル化は認められず安定しており、SPF 値は、45.3 であった。

【0088】

[実施例 9] 化粧品の製造例－3

下記表 5 の組成に基づいて、下記製造方法により美容液を製造した。

【0089】

(製造方法)

①下記 A 相成分に下記 B 相成分の各成分を加え、90℃で溶解分散させた。

②その後、①で得られた混合物を攪拌冷却しながら、これに下記 C 相成分を加えて pH 値を 8.0 に調整した後、50℃まで冷却し、目的とする化粧品（美容液）を得た。

【0090】

【表 5】 化粧品（美容液）の組成（単位：重量部）

成 分		配合量
A 相	精製水	t o 100.0
B 相	プロピレングリコール	6.0
	ポリエチレングリコール 400	3.0
	アスコルビン酸マグネシウム	0.5
	P O E モノラウリン酸ソルビタン	0.4
	寒天	1.0
	ネイティブジェランガム	0.4
	トリメチルグリシン	1.0
	実施例 3 において得られたシリカ被覆微粒子酸化亜鉛の 1, 3-ブチレングリコール分散体*	33.3
C 相	p H 調整剤	適量

\* 実施例 3 において得られたシリカ被覆微粒子酸化亜鉛の濃度 30 重量%

#### 【0091】

（化粧料の評価）

得られた化粧料（美容液）を 40℃、3 ヶ月放置した後、この化粧料について、化粧料における分離、ゲル化等の安定性についての変化の有無を確認すると共に、このときの紫外線防護効果について、実施例 6 における S P F の測定方法と同様の方法により評価（S P F の測定）を行った。

#### 【0092】

この結果、化粧料における分離及びゲル化等の安定性について変化は認められず安定しており、S P F 値は、13.3 であった。

#### 【0093】

〔実施例 10〕化粧料の製造例－4

下記表 6 の組成に基づいて、下記製造方法によりクリームを製造した。

#### 【0094】

## (製造方法)

①下記A相成分を80℃で溶解させた。

②①で得られた混合物に、予め加温して混合した下記B相成分を加え、攪拌し、乳化した。

③その後、②で得られた混合物を40℃まで冷却して、目的とする化粧料（クリーム）を得た。

## 【0095】

【表6】 化粧料（クリーム）の組成（単位：重量部）

成 分		配合量
A相	ポリビニルピロリドン／エイコセン共重合体*	2.0
	スクワラン	2.0
	ジメチルポリシロキサン	3.0
	トリ－2－エチルヘキサン酸グリセリル	3.0
B相	アクリル酸・メタアクリル酸共重合体**	0.2
	精製水	62.5
	水酸化ナトリウム	0.1
	1,3－ブチレングリコール	7.0
	メチルパラベン	0.2
	実施例2において得られたシリカ被覆微粒子酸化チタン	15.0
	実施例4において得られたアルミナ被覆微粒子酸化亜鉛	5.0

\* アンタロンV－220（GAF社製）

\*\* PEMUREN TR-1（BF Goodrich社製）

## 【0096】

## (化粧料の評価)

得られた化粧料（クリーム）を50℃、1ヶ月放置した後、この化粧料につい

て、化粧品における分離、ゲル化等の安定性についての変化の有無を確認すると共に、このときの紫外線防護効果について、実施例 6 における SPF の測定方法と同様の方法により評価（SPF の測定）を行った。

【0097】

この結果、化粧品における分離及びゲル化等の安定性について変化は認められず安定しており、SPF 値は、37.1 であった。

【0098】

[実施例 11] 化粧料の製造例－5

下記表 7 の組成に基づいて、下記製造方法によりファンデーションを製造した。

【0099】

(製造方法)

- ①下記 A 相成分を 90℃ に加熱して溶解分散させ、70℃ に保持した。
- ②下記 B 相成分を 3 本ロール処理して 70℃ に保持した。
- ③①で得られた混合物と②で得られた混合物とをホモミキサーで混合、乳化した後、40℃ まで冷却し、目的とする化粧料（ファンデーション）を得た。

【0100】



【表 7】 化粧品（ファンデーション）の組成（単位：重量部）

成 分		配合量
A 相	精製水	73.2
	1,3-ブチレングリコール	5.0
	グリセリン	5.0
	グアーガム	0.4
	寒天	0.9
	実施例 2 において得られたシリカ被覆微粒子酸化チタン	5.7
	メチルパラベン	0.2
B 相	シリコーン処理タルク	5.0
	シリコーン処理セリサイト	2.0
	シリコーン処理酸化チタン*	15.0
	アミノ酸処理赤色酸化鉄	1.5
	アミノ酸処理黄酸化鉄	3.0
	アミノ酸処理黒酸化鉄	0.5
	デカメチルペンタシクロシロキサン	10.0
	ポリエーテル変性シリコーン	1.0
	メチルフェニルポリシロキサン	10.0
	ジメチルポリシロキサン	8.0

\* 顔料級

【0101】

(化粧料の評価)

得られた化粧料（ファンデーション）を 50℃、1 ヶ月放置した後、この化粧料について、化粧料における分離、ゲル化等の安定性についての変化の有無を確認すると共に、このときの紫外線防護効果について、実施例 6 における SPF の測定方法と同様の方法により評価（SPF の測定）を行った。

【0102】

この結果、化粧品における分離及びゲル化等の安定性について変化は認められず安定しており、そのSPF値は、15.8であった。

#### 【0103】

以上から、本発明の化粧品において、紫外線散乱剤を分散剤に分散させた場合に紫外線散乱剤の凝集が抑止され、分散体中で紫外線散乱剤が均一に分散し、かつ分散剤に対して安定に、しかも長期間分散していることは明らかである。更に、このような化粧料を簡便に製造することができる。従って、本発明によれば、高い紫外線防護効果を有し、従来品より乳化安定性に優れ、更に使用感及び安全性に極めて優れた化粧料を提供することができる。

#### 【0104】

##### 【発明の効果】

本発明により、紫外線散乱剤を分散剤中に配合し（分散させ）て、紫外線散乱剤の凝集が抑止され、かつ分散安定性に極めて優れた分散体を提供することができる。

#### 【0105】

更に、前記無機酸化物で被覆した紫外線散乱剤及び前記分散剤、又は前記分散体を使用して、高い紫外線防護効果を有し、使用感等にも優れた化粧料を、容易かつ簡便に製造することができる。従って、本発明は特に化粧料分野において、工業的に極めて有用である。

【書類名】 要約書

【要約】

【課題】

分散安定性に優れた分散体、即ち、紫外線散乱剤を分散剤に分散させた場合に分散体中に均一かつ長期間安定に当該紫外線散乱剤が分散した分散体を開発し、このような分散体を配合した乳化安定性等に優れた化粧料を提供する。

【解決手段】

無機酸化物で被覆した紫外線散乱剤を分散剤に配合することにより、紫外線散乱剤の凝集が抑止され、分散安定性に極めて優れた分散体を提供する。

また、前記無機酸化物で被覆した紫外線散乱剤及び前記分散剤、又は前記分散体を使用して、高い紫外線防護効果を有し、従来品より乳化安定性に優れ、更に使用感及び安全性にも優れている化粧料も提供する。

【選択図】

なし

特願 2 0 0 3 - 1 6 3 8 9 3

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号

[ 3 9 1 0 2 4 7 0 0 ]

1. 変更年月日                    2 0 0 2 年    6 月 2 8 日  
    [変更理由]                    住所変更  
        住 所                    埼玉県さいたま市大字代山原の下 7 0 5 番地の 1  
        氏 名                    三好化成株式会社
  
2. 変更年月日                    2 0 0 3 年    6 月 1 7 日  
    [変更理由]                    住所変更  
        住 所                    埼玉県さいたま市緑区大字代山原ノ下 7 0 5 番地の 1  
        氏 名                    三好化成株式会社